

DIALOG(R)File 347:JAPI0

(c) 2005 JPO & JAPI0. All rts. reserv.

07339989   \*\*Image available\*\*

ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT, AND MANUFACTURING METHOD OF THE SAME

PUB. NO.:       2002-208480 [JP 2002208480 A]

PUBLISHED:     July 26, 2002 (20020726)

INVENTOR(s):   INOUE TADASHI

APPLICANT(s):  INOUE TADASHI

APPL. NO.:     2001-001952 [JP 20011952]

FILED:         January 09, 2001 (20010109)

INTL CLASS:    H05B-033/10; G09F-009/00; H05B-033/12; H05B-033/14;  
                 H05B-033/22

#### ABSTRACT

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an electroluminescence element with high resolution, restrained from unevenness of a light emission element caused by a mismatch between an evaporation mask and evaporation sections which is necessary for an organic EL display panel.

SOLUTION: The manufacturing method of the EL element includes the processes of (a) arranging a mask having openings at prescribed positions so as to closely contact or come near the upper part of an insulation layer, after successively laminating the first electrode and the insulation layer on a substrate, and (b) removing the insulation layer from the first sections, of which the position is corresponding to the openings of the mask, by radiating electron beam from the upper part of the mask, and (c) forming a light emission layer with the first color on the first electrode exposed at the first sections from which, the insulation layer has been removed, by depositing the first organic electroluminescent medium while leaving the mask untouched, and (d) arranging the mask so that the openings of the mask locates at the position of making the second sections expose, while arranging the mask so as to closely contact with or come near to the upper part of an insulation layer. The light emission layers of respective colors are formed on the first electrode by repeating the process (b) and (c).

COPYRIGHT: (C)2002, JPO

| (51) Int. Cl. <sup>7</sup> | 識別記号 | F I        | テ-マコ-ト (参考) |
|----------------------------|------|------------|-------------|
| H05B 33/10                 |      | H05B 33/10 | 3K007       |
| G09F 9/00                  | 338  | G09F 9/00  | 5G435       |
| H05B 33/12                 |      | H05B 33/12 | B           |
| 33/14                      |      | 33/14      | B           |
| 33/22                      |      | 33/22      | Z           |

審査請求 有 請求項の数 7 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2001-1952(P 2001-1952)

(22) 出願日 平成13年1月9日(2001.1.9)

(71) 出願人 501011875

井 上 直 史

東京都小金井市東町1-5-24

(72) 発明者 井 上 直 史

東京都小金井市東町1-5-24

(74) 代理人 100081994

弁理士 鈴木 俊一郎 (外 3 名)

F タ-ム(参考) 3K007 AB02 AB04 AB11 AB18 BA06

CA01 CB01 DA01 DB03 EB00

FA01

5G435 AA03 AA04 AA14 AA16 AA17

BB05 CC09 CC12 HH20 KK05

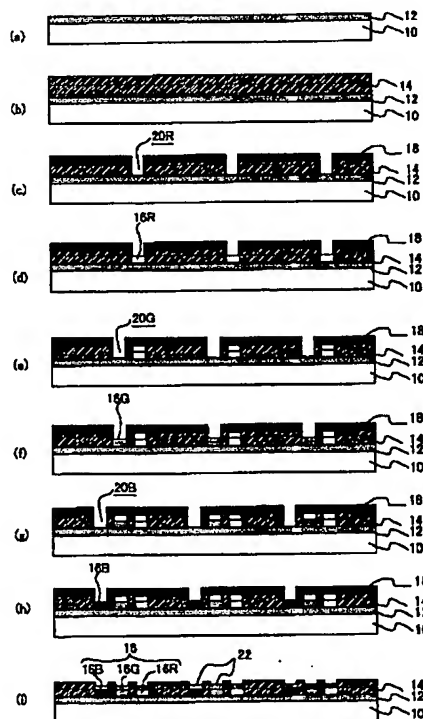
KK10

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 有機ELディスプレイパネルにおける必要な蒸着区割と蒸着マスクの位置ずれによる発光層の不均一を抑制し、高精細化を図った発光素子を提供する。

【解決手段】 本発明のEL素子の製法は、(a) 基板上に第1電極、絶縁層を順次積層形成した後に、所定部位を開口してなるマスクを、該絶縁層上部に、密着または近接して配置し、(b) 電子線ビームをマスク上部より照射して、マスクの開口部に対応する位置に第1の区画から絶縁層を除去し、(c) マスクをそのままにして第1の有機エレクトロルミネッセンス媒体を堆積させ、絶縁層の除去された前記第1の区画において露出する第1電極上に第1の色の発光層を形成し、(d) 同様にマスクを該絶縁層上部に、密着または近接して配置するが、マスクの開口部の位置は第2の区画を露出させる位置にマスクを配置する工程、さらに(b)、(c)工程を繰り返して発光層を形成し第1電極上に各色の発光層を形成する工程を有する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数色の発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、該素子における発光層の形成が、(a)基板上に第1電極、絶縁層を順次積層形成した後に、所定部位を開口してなるマスクを、該絶縁層上部に、密着または近接して配置し、

(b)光ないし電子線ビームをマスク上部より照射して、マスクの開口部の位置する第1の区画において、絶縁層を除去し、(c)さらに、マスクを同位置に保持した状態で、第1の有機エレクトロルミネッセンス媒体を堆積させて、絶縁層の除去された前記第1の区画において露出する前記第1電極上に第1の色の発光層を形成し、次いで、(d)上記と同様にマスクを該絶縁層上部に、密着または近接して配置するが、マスクの開口部の位置は第2の区画を露出させる位置として、上記

(b)、(c)工程と同様な処理を行って、該第2の区画において第1電極上に第2の色の発光層を形成し、

(e)その後、さらに所期の色数の発光層が形成されるまで、マスクの開口部により露出される位置を移動させながら、上記(b)、(c)工程と同様な処理を逐次繰り返して残りの各区画においても、第1電極上に各色の発光層を形成することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項2】 各色の発光層を形成するのに用いる上記マスクが、各色に共通するものであり、1つの色の発光層の形成後に、マスクの開口部の位置を次の所定位置へと移動させて、次の色の発光層の形成を行うことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項3】 前記光ないし電子線ビームが、エキシマレーザである請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項4】 前記エキシマレーザがKrFレーザである請求項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項5】 請求項1～4のいずれか1つに記載の方法により製造されたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 発光層材料として遷移金属錯体を用いることを特徴とする請求項1～4のいずれか1つに記載の方法により製造された有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】 発光層材料としてイリジウム錯体を用いることを特徴とする請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、発光素子およびその製造方法に関するものであり、詳しくは本発明は、電流の注入によって発光する有機化合物材料のエレクトロ

ルミネッセンス(以下、「EL」とも記する。)3色の発光層を使った3画素で1つのカラー画素を構成する発光層への電荷の注入時に光を発する有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)からなる有機EL(electro luminescence)ディスプレイデバイスおよびその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】有機EL素子は、非常に薄く、マトリックス状にアドレス可能であり、非常に低電圧でも駆動可能であるという長所がある。また、有機EL素子は、視野角が広く、プラスチックのような可撓性(flexible)透明基板にも形成可能であり、このため次世代の平板ディスプレイ(Flat Panel Display: FPD)に適した素子として期待されている。また、現況においてFPDの主流であるLCD(Liquid Crystal Display)に比べてバックライト(backlight)を必要としないため、電力消費が少ないという長所もある。

【0003】上記のような長所を持つ有機EL素子は、一般的に無機EL素子とは動作原理の面で大きな違いがある。無機EL素子は、高い電界によって加速された電子が発光体(luminescent impurity)に衝突して励起され、励起された発光体が基底状態に落ちながら発光するのに対して、有機EL素子は、陰極及び陽極から各々注入された電子と正孔とが結合して生成されたエクシトン(exciton)が励起状態から基底状態に落ちながら発光するものであり、発光効率、輝度の面で無機EL素子よりも優れた特性が得られる。

【0004】さらに、このような有機EL素子に用いられる有機EL材料の発光寿命の改善、発光色の多様化といった研究開発が進み、フルカラーの有機ELディスプレイデバイスの実用化も近づいている。フルカラーの有機ELディスプレイデバイスの構造としては、(1)発光層の面内に、R(赤)、G(緑)、B(青)の三色の発光画素を配置し、隣接する各色1個ずつの3つの画素で1つのカラー画素を形成する方法(以下、「3色発光法」と称する。)、(2)単一色、例えば青色の発光層を用い、この上部に設けられた、RGB3色への色変換層(B→R変換、B→G変換、B→B変換)と組み合わせることでカラー化する方法(以下、「色変換法」と称する。)、および(3)RGBの3色のスペクトラムを含む光、例えば白色光を発する発光層を用い、その上部に、RGBの各色へのカラーフィルター層を形成してカラー化する方法(以下、「白色法」と称する。)が知られている。

【0005】このうち、3色発光法は、原理的には、寿命、色純度および発光効率といった点で、色変換法および白色法より優れたものである。しかしながら、3色発光法による有機ELディスプレイデバイスに関しては、その素子形成工程に起因して以下のような問題が指摘されていた。まず第1に、有機EL素子に用いられる発光

層となる有機膜は、概して、水分に弱く、また有機溶剤や薬品に対する耐久性にも乏しいものである。3色発光法の場合、発光材料の異なる3画素を同一基板上に形成する必要があり、このためには最低でも3回、発光層を加工しなければならない。電子デバイスの加工方法としては、フォトリソグラフィー法が一般的なものではあるが、周知のように、フォトリソグラフィー法において用いられるレジストは多量の有機溶剤を含み、また現像液は一般に水溶液である。従って、フォトリソグラフィー法によって各色画素をパターンニングして形成すると、発光層の有機膜が、素子加工工程においてこれらの水分や有機溶剤等に多数回曝されることとなるため、発光寿命が短くなる、微細パターンの形成ができない等、素子の特性を大きく劣化させてしまうことになるため、採択し難い。

【0006】また、3色発光法による有機ELディスプレイデバイスを製造する方法としては、蒸着マスクを用いた方法も考えられる。例えば、基板上に第1電極を形成した後、所定部位の開口された蒸着マスクを第1電極上に配置して、開口部に第1の色の有機EL材料を蒸着させ、その後順次蒸着マスクの開口部を移動して残りの各色の有機EL材料を蒸着させるといったものである。しかしながら、この方法によると、蒸着マスクと基板間との密着不要による蒸着物の回りこみや、あるいは強制的に蒸着マスクと基板とを密着させたことによる有機EL発光層の損傷の問題等が生じる。

【0007】このため、従来、このような3色発光法による有機ELディスプレイデバイスを製造する方法としては、例えば、特開平8-227276号公報、特開平8-315981号公報などに示されるように、基板上に第1電極を形成した後、その上部にポリイミド等の絶縁性物質を堆積させ、この絶縁性物質による層を、一般的なフォトリソグラフィー法およびウェットまたはドライエッチング法を用いてパターンニングして、第1電極層の各発光画素形成部を露出させるようにこれ以外の部位において基板より突出する複数の隔壁を形成する方法が用いられていた。このような隔壁の形成後、所定の開口部を有する蒸着マスクを前記隔壁上部に配置し、マスクの開口部が前記複数の隔壁間の開口部の一部に整合し、かつ隔壁間の開口部の他の部位はマスクの実部により遮蔽されるものとして、当該開口位置において第1電極層上に第1の色の有機EL材料を蒸着させ、その後順次蒸着マスクの開口部を移動して残りの各色の有機EL材料を蒸着させるものである。

【0008】このように絶縁性物質による隔壁を形成する方法においては、上記したような蒸着マスクと基板間との密着不要による蒸着物の回りこみや、あるいは強制的に蒸着マスクと基板とを密着させたことによる有機EL発光層の損傷といった問題は生じ難いが、画素パターンが微細化してくると、隔壁上に蒸着マスクを整合して

配置することが困難となる。また、当該隔壁の形成は、フォトリソグラフィー法を用いて行われているが、この加工工程において隔壁等に残留した水分や有機溶剤等の影響によって、各発光画素を構成する有機EL材料が劣化し、発光寿命等の素子性能が低下してしまう問題があった。特に、上記公報においては、各発光画素上に形成される第二電極間の隣接間隔を大きなものとし、電極間の短絡を防止するために当該隔壁の上部にオーバーハング部を設ける技術が開示されているが、このように異方にエッチングできる材料は、比較的吸水性の高いフォトレジスト等の有機物であることが多く、このようなオーバーハング部を設ける技術を採用すると、上記したような問題はより顕著となるものである。

【0009】さらに、3色発光法による有機ELディスプレイデバイスの素子形成工程における上記したような問題点を解決するために、特開2000-12220号公報においては、上記したような隔壁の形成において、第1電極上部に形成したフォトレジスト等の絶縁性物質をレーザービームを用いてパターンニングする方法が提唱されている。

【0010】このようにレーザービームを用いてパターンニングする方法によれば、隔壁等への水分や有機溶剤等の残留による発光層の劣化の問題はほぼ解消されるものであると思われる。しかしながら、この特開2000-12220号公報に開示される技術をもってしても、上記したような別の問題点、すなわち、有機EL材料を堆積させる上で、隔壁上に蒸着マスクを整合して配置することが困難となるという点は未だ、解決できないものであった。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明は改良された有機EL素子およびその製造方法を提供することを課題とする。本発明はまた、有機ELディスプレイパネルにおける必要な蒸着区割と蒸着マスクの位置ずれによる発光層の不均一を抑制し、高精細化を図った発光素子およびその製造方法を提供することを課題とする。本発明はさらに、生産の歩留りと製品寿命の改善を図ってなる発光素子およびその製造方法を提供することを課題とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】本発明は、複数色の発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、該素子における発光層の形成が、(a)基板上に第1電極、絶縁層を順次積層形成した後に、所定部位を開口してなるマスクを、該絶縁層上部に、密着または近接して配置し、(b)光ないし電子線ビームをマスク上部より照射して、マスクの開口部の位置する第1の区画において、絶縁層を除去し、(c)さらに、マスクを同位置に保持した状態で、第1の有機エレクトロルミネッセンス媒体を堆積させて、絶縁層の除去された前記第1の区画において露出する前記第1電極上に第1の

色の発光層を形成し、次いで、(d) 上記と同様にマスクを該絶縁層上部に、密着または近接して配置するが、マスクの開口部の位置は第2の区画を露出させる位置として、上記(b)、(c)工程と同様な処理を行って、該第2の区画において第1電極上に第2の色の発光層を形成し、(e) その後、さらに所期の色数の発光層が形成されるまで、マスクの開口部により露出される位置を移動させながら、上記(b)、(c)工程と同様な処理を逐次繰り返して残りの各区画においても、第1電極上に各色の発光層を形成することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法である。

【0013】また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法の好ましい実施態様においては、各色の発光層を形成するのに用いる上記マスクが、各色に共通するものであり、1つの色の発光層の形成後に、マスクの開口部の位置を次の所定位置へと移動させて、次の色の発光層の形成を行うものである。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法においては、前記光ないし電子線ビームが、エキシマーレーザー、特にKrFレーザーであることが好ましい。

【0014】さらに、上記課題は、複数色の発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該素子における発光層の形成が、(a) 基板上に第1電極、絶縁層を順次積層形成した後に、所定部位を開口してなるマスクを、該絶縁層上部に、密着または近接して配置し、(b) 光ないし電子線ビームをマスク上部より照射して、マスクの開口部の位置する第1の区画において、絶縁層を除去し、(c) さらに、マスクを同位置に保持した状態で、第1の有機エレクトロルミネッセンス媒体を堆積させて、絶縁層の除去された前記第1の区画において露出する前記第1電極上に第1の色の発光層を形成し、次いで、(d) 上記と同様にマスクを該絶縁層上部に、密着または近接して配置するが、マスクの開口部の位置は第2の区画を露出させる位置として、上記

(b)、(c)工程と同様な処理を行って、該第2の区画において第1電極上に第2の色の発光層を形成し、

(e) その後、さらに所期の色数の発光層が形成されるまで、マスクの開口部により露出される位置を移動させながら、上記(b)、(c)工程と同様な処理を逐次繰り返して残りの各区画においても、第1電極上に各色の発光層を形成することを特徴とする本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子によっても解決されるものである。

【0015】

【発明の実施の形態】このように、本発明の製造方法においては、絶縁層の除去マスクと発光層の蒸着マスクとを共通にし、同位置にて両加工を行う。従って、両者間における位置合わせが不要であり、その位置ずれは生じない。このため、有機EL素子デバイスの高精細化が可能である。

【0016】また、絶縁層の除去にレーザーに代表される光ないし電子線ビームを用いるものであるため、この加工工程において絶縁層に水分、有機溶媒等が吸収されることはなく、絶縁層からの残留水分、ガスの発生による発光層の劣化という問題を防ぐことができる。従ってディスプレイの製造不良率、寿命の改善が期待される。

【0017】さらに本発明においては、絶縁層の除去において、マスクを絶縁層に密着または、好ましくは100μm以下、特に好ましくは10~100μmの範囲内に近接させて配置することにより、隔壁として残る絶縁層は開口部が狭く、基板上に形成される第1電極、例えば、ITO陽極の面がより広く形成する事も可能であり、それにより発光層上面に形成される第2電極である陰極と前記ITO陽極との電氣的ショートを防ぐ絶縁スペースを設けることができる。

【0018】以下、本発明を実施態様に基づきより詳細に説明する。本発明の有機EL素子は、複数色の発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、基本的には、透明基板上に形成された第1電極としての透明電極(陽極)と、第2電極(陰極)との間に、複数の有機EL材料からなる複数色の発光層を介在させたものである。

【0019】本発明の有機EL素子においては、透明基板上に形成される第1電極としての透明電極(陽極)としては、例えばITO(In-Sn-Oxide)、ZnO、CuSなどの無機系材料、あるいは有機系透明導電性材料を、ガラスなどの透明基板上に、蒸着やスパッタリングなどの方法により薄膜を形成させたものが用いられる。この透明電極のパターン化は、フォトリソグラフィなどの通常の微細加工、あるいは光ないし電子線ビームを用いたエッチング加工などによって形成される。一方、第2電極(陰極)としては、金属単体又は金属合金などの金属系材料が用いられるが、電子の注入効率が高く、劣化の少ない材料が好ましく、特にMg-Ag合金やAl-Li合金などの金属合金が好適である。該第2電極(陰極)は、これらの金属系材料を蒸着やスパッタリングなどの方法により、後述の発光層上に薄膜を形成させることによって作製することができる。

【0020】本発明の有機EL素子のその積層構造自体は特に限定されるものではなく、例えば、発光層と各電極との間に、それぞれ正孔輸送層、電子注入層などを積層した多層構造のものであってもよい。この有機EL素子の素子構成としては、例えば基板/透明電極(陽極)/発光層/金属系電極(陰極)、基板/透明電極(陽極)/発光層/電子輸送層/金属系電極(陰極)、基板/透明電極(陽極)/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/金属系電極(陰極)、基板/透明電極(陽極)/正孔輸送層/発光層/金属系電極(陰極)、などを挙げることができる。さらに、これら各層間に、発光効率を高める、エッチング時における各層の損傷を防止する等の目

的から、中間層や保護層を設けても良い。

【0021】この発光層に用いられる有機EL材料の種類については特に制限はなく、従来有機EL素子における発光材料として公知のものをを用いることができる。また、複数色の発光層としても、一般的には、赤(R)、緑(G)、青(B)の3色により構成されるが、必ずしも、このようなRGBの3色に限られるものではなく、より多色あるいはより少ない2色によるものとしても、RGBとは異なる、例えば、シアン、マゼンダ、イエローといった別の色素の組合せであってもよい。

【0022】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に、陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発色させる機能を有する層を形成することができるものであればよい。このような発光層を形成する化合物としては、例えば、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ヒラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物などが挙げられる。特に遷移金属錯体が好ましく、中でもイリジウム錯体が好ましい。発光層の膜厚特に限定されるものではないが、通常1nm~5nmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、さらに好ましくは10nm~50nmである。

【0023】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陽極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラソリン誘導体、ピラソロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン化合物、ポリフィリン化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェンなどの導電性高分子オリゴマー等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に

限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、さらに好ましくは10nm~500nmである。正孔注入層、正孔輸送層は、上述した材料の一種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

【0024】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい、その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノリン誘導体、チオピランジオキsid誘導体、カルボジイミド有導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン誘導体などの複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体等を挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μm、であり、さらに好ましくは10nm~500nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の一種または二種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

【0025】また絶縁層を形成する材料としては、特に限定されるものではないが、例えばポリイミド、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも一種のコモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体等の有機高分子物質、シリコンオキサイドやシリコン窒化物等の無機物化合物などを例示することができる。このうち、後述するエッチングに用いられる光ないし電子線ビームの波長に対し高い吸収ピークを有し効率よく除去できるものであるものが好ましく、必要に応じて光感応剤等を配合することもできる。また、この絶縁層は、最終的な有機EL素子製品において各色の発光画素間の空間を埋めるものとして存在するが、この際、各色の発光画素による発光を鮮明とする上で、この画素間の空間部は黒色ないし暗色であることが望ましく、このため、絶縁層を形成する材料は、好ましくは黒色ないし暗色を呈していることが望ましい。このような黒色ないし暗色を呈する絶縁材料としては、例えば、上記したような有機高分子中に、酸化チ



タン、絶縁加工処理されたカーボンブラック等の着色剤を適当量配合したもの等を例示することができる。

【0026】形成できるその他の層としては、例えば、後述するような光ないし電子線レーザーによる絶縁層のエッチングの際に、第1電極層の損傷を防止する目的から、第1電極層と絶縁層との間に設けられる第1電極層の保護層を挙げることができ、この保護層を形成する材質の例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、TiおよびNiなどの金属；MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>およびTiO<sub>2</sub>などの金属酸化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>およびCaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物；ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも一種類のコモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体などをを用いることができる。

【0027】また、発光層による発光色の補正のために、積層構造体中に、カラーフィルター層を設けることも可能である。さらに第2電極を形成して素子構造とした後に、各発光層への湿気を遮断するように、パネルの全面を覆う保護膜を形成することも可能である。ここで、この保護膜は吸湿剤又はその混合物を含み得る。

【0028】図1は、本発明の一実施形態における有機ELディスプレイパネルの製造工程を示す工程断面図である。まず、図1(a)に示すように、ガラス板等の透光性基板10上にITO等の透明層をパターンニングしてストライプ状の第1電極12を形成し、次いで図1(b)に示すようにその上部に絶縁層14を形成する。

【0029】次いで、第1電極12上に、複数色の発光層16を1色づつ順次形成していくが、その手順としては次のようにして行う。発光層16として、例えば赤色(R)16R、緑色(G)16G、および青色(B)16Cの3色を形成し、R、G、Bの順で、発光層の形成を行うとすれば、まず、図1(c)に示すように、R色区画を開口した蒸着マスク18を絶縁層14に密着または極めて近接せしめて配置し、光ないし電子線ビーム照射にて、露出したR色区画の絶縁層14を取り除く。この時使用する光ないし電子線ビームの出力エネルギーを調整することで、金属製の蒸着マスクとITO陽極を損傷せずに絶縁層のみを取り除くことが可能である。次いで、図1(d)に示すように、蒸着マスク18を同位置に保持したまま、絶縁層14が除去され第1電極12の露出した区画部位20Rに、前記したような赤色(R)発光材料を蒸着により堆積させ、R色発光層16Rを形成する。次いで、図1(e)～図1(f)に示すよう

に、蒸着マスク18をG色区画を開口する所定の位置に移動し、上記R色区画と同様の光ないし電子線ビーム照射によるG色区画の絶縁層14除去および除去部位へG色発光材料蒸着によるG色発光層16Gの形成をおこない、さらに図1(g)～図1(h)に示すように、蒸着マスク18をB色区画を開口する所定の位置に移動し、同様の処理を繰り返してB色発光層16Bの形成を行う。

【0030】その後、図1(i)に示すように各RGB発光層上部に、第2電極22としての金属材料を堆積させて前記ITO電極と直交するストライプ状の陰極を形成することで、素子を製造する。なお、図1に示す実施形態においては、基板/第1電極/発光層/第2電極という積層構造の場合を例にとり、積層方法を示したが、これ以外の積層構造の場合であっても、適宜、追加される層を積層する工程を増やす変更を加えるのみで、同様にして製造することができる。

【0031】また、本発明の製造方法において、絶縁層14の厚さとしては、0.1～5μm、より好ましくは0.3～2μm程度のものとするのが望ましく、この絶縁層14のレーザービーム等によるエッチングによって形成される絶縁隔壁の高さを同数値範囲のものとすることができる。また、各画素間に存在する当該絶縁隔壁の厚さ(隣接するRGBの各画素間の間隔)としては、0.5～100μm、より好ましくは、10～60μm程度のものとするのが望ましい。さらにRGBの各発光素子の区画の大きさとしては、10μm角～300μm角に相当する程度とすることが好ましく、またその形状としては長方形の形状とすることが好ましい。

【0032】次に、本発明において絶縁層の除去のために用いられる光ないし電子線ビーム照射条件について説明する。本発明の絶縁層の除去に用いられる光ないし電子線ビームとしては、絶縁層を形成する物質を有効に加工できるものであれば、特に限定されるものではなく、波長10nm～20μmのレーザービーム(赤外線、可視光線、紫外線、X線)を発振できるものであれば、いずれのものであってもよい。このようなレーザーとしては、例えば炭酸ガスレーザー、一酸化炭素レーザー、HFレーザー、ヨウ素レーザー、YAGレーザー、ガラスレーザー、YLFレーザー、アレクサンドライトレーザー、半導体レーザー、色素レーザー、窒素レーザー、エキシマーレーザー、X線レーザー、自由電子レーザーなどが挙げられ、また、高調波素子などを用いて波長変換したものを使用することもできる。

【0033】これらの中で、波長の短いものほどビームを微細に絞ることができるので好ましく、特に紫外レーザーは熱的な寄与の少ないアブレーション現象による加工を行うことができるので最適である。このような条件を満たすレーザーとしては、エキシマーレーザーが知られており、KrFレーザー、ArFレーザー、F2レー

ザーが好ましく、このうち特にKrFレーザーが好ましい。

【0034】ここでいうアブレーション加工法とは、レーザービームを固体物質表面に照射した際、このレーザーエネルギーを吸収した物質が大きなエネルギーをもつフラグメントとして飛散する現象、すなわちレーザーアブレーション現象を利用して微細加工を施す方法のことである。このレーザーアブレーション現象は、1980年初頭に見出され、レーザー特有の多光子過程により生じるものと考えられている。エキシマレーザーに代表される高いエネルギーをもつ紫外レーザーを、例えばポリマーに照射した場合には、通常の化学結合を解離し、余剰エネルギーはフラグメントの飛散に用いられるため、熱的作用の小さい過程によりエッチングが行われ、周囲に熱的影響を与えないシャープな微細加工が可能となる。このような現象はポリマー分子に限らず、通常の有機固体においても起こるものと考えられる。

【0035】このレーザーとしては、さらに、連続発振モードよりはパルスモードとすることが好ましい。連続発振モードを使用すれば、熱的劣化によって素子が損傷される虞が高いからである。また、使用する光ないし電子線ビームのパワー及びパルス反復回数は、絶縁層のみを除去する程度に調整すべきであり、第1電極に損傷を与えるような過度の照射は避けるべきである。

【0036】また本発明においては、レーザーの発振方式としては、パルス発振方式が有利である。連続発振方式では、ステージを駆動させることにより、比較的自由に加工操作を行うことができるが、アブレーション現象が生じにくく、熱的蓄積が起こるため、加工精度などの問題が生じ、所望の微細加工を行うことが困難である。一方、パルス発振方式では、パルス間隔とステージの駆動速度を考慮してレーザービームを照射する必要があるが、パルスのレーザービームを照射することにより、アブレーション現象を起こすことができ、熱的損傷の少ない微細加工を行うことができるので、このパルス発振方式が有利である。パルス幅は短いほど、熱的な損傷を少なくすることができるため、有利である。パルス幅としては100μ秒以下が望ましく、より好ましくは100ナノ秒以下、さらに好ましくはピコ秒、フェムト秒である。

【0037】さらに上記実施態様においては、各有機EL発光層の堆積方法として、蒸着法を例示したが、発光層の形成方法としては、このような蒸着法に特に限定されるわけではなく、これ以外にも、印刷法、特にインクジェット方式等のその他の公知の手法を採択することは可能である。このようにして製造される本発明に係る有機EL素子は、非常に高精度な素子構造を有するものとすることができ、輝度、発光寿命等の諸性能において優れたものとなるが、代表的には、例えば、250cd・m<sup>2</sup>以上の高い輝度といった特性を発揮し得るものである。

【0038】

【発明の効果】以上述べたように本発明によれば、複色の発光層を有する有機EL素子を高精度を持って、生産効率高く製造することができ、また得られる素子は、輝度、発光寿命等の諸性能において優れたものとなる。

【0039】

【実施例】次に本発明を実施例によりさらに具体的に説明する。

【0040】

【実施例1】まず、ガラス板よりなる透光性基板上に形成したITOをバタニングしてストライプ状の第1電極(膜厚100μm)を形成し、洗浄した後、その上部に絶縁性ポリマー(ポリイミド)を、スピンコーティングによって乾燥膜厚が1μmの厚さとなるように塗布して絶縁層を形成した。

【0041】次いで、この絶縁層上部に、330×320μmの大きさの矩形の開口部を複数有するステンレス鋼製マスクを、絶縁層に密着して配置し、その上部からKrFエキシマレーザーを照射して、マスク開口部における絶縁層を除去した。マスクを同位置に保持したまま、絶縁層の除去された部位に、正孔輸送層としてのTPD(N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)ベンジジン)を50nm厚で、次いで、赤色(R)発光層として、アルミニウム-トリス(キノリン-8-オレート)(通称Alq)に4重量%量の10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポリフィン(通称TPP)をドープしたものを40nm厚で、さらに電子輸送層として1,3,4-トリアゾール誘導体を20nm厚で、蒸着により堆積させた。

【0042】その後、前記マスクを移動させて、上記と同様にKrFエキシマレーザー照射により絶縁層を除去し、形成された緑色(G)発光画素形成のため孔部に、正孔輸送層としてのTPDを50nm厚で、次いで、G色発光層として、ビス(10-ホドロキシベンゾ[h]キノリネート)ベリリウム(通称Bebq)を40nm厚で、さらに電子輸送層として1,3,4-トリアゾール誘導体を20nm厚で、蒸着により堆積させ、さらに前記マスクを移動させ、KrFエキシマレーザー照射により絶縁層を除去し、形成された青色(B)発光画素形成のため孔部に、正孔輸送層としてのPDAを50nm厚で、次いで、B色発光層として、(N,N'-ジサリリデン-1,6-ヘキサジアミネート)Zn(II)に3重量%のベリレンをドープしたものを40nm厚で、さらに電子輸送層として1,3,4-トリアゾール誘導体を20nm厚で、蒸着により堆積させた。

【0043】その後、各RGB発光層上部に、Mg-Agを100nm厚で堆積させて前記ITO電極と直交するストライプ状の陰極を形成した。このようにして形成されたフルカラー有機EL素子の電極間に8Vの電圧を印加したところ、選択された部分が明るく発光し、また発光輝度の半減寿命は50℃環境下で1600時間であ



った。

【0044】

【実施例2】上記実施例1と同様に、ガラス板よりなる透光性基板上に形成したITOをパターニングしてストライプ状の第1電極(膜厚100 $\mu$ m)を形成し、洗浄した後フッ化ビニリデン(アルドリッチ社製)をスピンコーティングによって乾燥膜厚が50nmの厚さとなるように塗布して中間層を形成し、さらにその上部に絶縁性ポリマー(ポリイミド)を、スピンコーティングによ

って乾燥膜厚が800nmの厚さとなるように塗布して絶縁層を形成した。

【0045】次いで、この絶縁層上部に、330 $\times$ 320 $\mu$ mの大きさの矩形の開口部を複数有するステンレス鋼製マスクを、絶縁層に密着して配置し、その上部からKrFエキシマレーザーを照射して、マスク開口部における絶縁層を除去した。なお、この実施例2においては実施例1におけるものより絶縁層の膜厚が薄いものであったが、前記中間層の存在によって、レーザー照射時におけるITO電極の損傷は有効に防止された。マスクを同位置に保持したまま、絶縁層の除去された部位に、正孔輸送層としてのTPDを50nm厚で、次いで、赤色

(R)発光層として、アルミニウム-トリス(キノリン-8-オレイト(通称Alq)に4重量%の量の10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン(通称TPP)をドープしたものを40nm厚で、さらに電子輸送層として1,3,4-トリアゾール誘導体を20nm厚で、さらに色補正のための赤色カラーフィルター層を300nm厚で、蒸着により堆積させた。

【0046】その後、前記マスクを移動させて、上記と同様にKrFエキシマレーザー照射により絶縁層を除去し、形成された緑色(G)発光画素形成のため孔部に、正孔輸送層としてのPDAを50nm厚で、次いで、G色発光層として、4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ジフェニ

ルに対して6.4重量%の量のトリス(2-フェニルピリジン)イリジウムをドープしたものを40nm厚で、電子輸送層として1,3,4-トリアゾール誘導体を20nm厚で、さらに色補正のための緑色カラーフィルター層を300nm厚で蒸着により堆積させ、さらに前記マスクを移動させ、KrFエキシマレーザー照射により絶縁層を除去し、形成された青色(B)発光画素形成のため孔部に、正孔輸送層としてのPDAを50nm厚で、次いで、B色発光層として、(N,N'-ジサリシリデン-1,6-ヘキサジアンミレート)Zn(II)に3重量%の量のペリレンをドープしたものを40nm厚で、電子輸送層として1,3,4-トリアゾール誘導体を20nm厚で、さらに色補正のための青色カラーフィルター層を400nm厚で蒸着により堆積させた。

【0047】その後、各RGB発光層上部に、Mg-Agを100nm厚で堆積させて前記ITO電極と直交するストライプ状の陰極を形成した。このようにして形成されたフルカラー有機EL素子の電極間に9Vの電圧を印加したところ、選択された部分が明るく発光し、また発光輝度の半減寿命は60℃環境下で1200時間であった。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係る有機EL素子の製造工程を示す断面図である。一般的なパッシブアドレス(passive addressing)の有機ELディスプレイパネルを示す平面図である。

【符号の説明】

- 10 透光性基板
- 12 第1電極
- 14 絶縁層
- 16、16R、16G、16B 発光層
- 18 蒸着マスク
- 22 第2電極

【図 1】

